

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-320876
 (43)Date of publication of application : 12.12.1997

(51)Int.CI.

H01F 41/02
 B22F 1/00
 B22F 3/00
 C22C 38/00
 H01F 1/053
 H01F 1/08

(21)Application number : 08-358309

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD

(22)Date of filing : 27.12.1996

(72)Inventor : TSUJIMOTO HIDEJI
 MINO NOBUTSUGU
 ISHIGAKI NAOYUKI
 TOKUHARA HIROKI

(30)Priority

Priority number : 08104198 Priority date : 29.03.1996 Priority country : JP

(54) MANUFACTURE OF ANISOTROPIC BOND MAGNET**(57)Abstract:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain an anisotropic magnet excellent in resistance to heat, weather resisting ability, and magnetic characteristics, by a method, wherein specified quantity of anisotropic R-Fe-B based magnetic powder, resin, liquid quench R-Fe-B based magnetic powder and hard ferrite magnetic powder are compounded and mixed, primary molding is performed to a specified density, and secondary molding is performed at a specified pressure.

SOLUTION: Compounded powder, wherein anisotropic R-Fe-B based magnetic powder is 45–98.5% resin is 1–10wt.%, and the compound ratio of liquid rapid quench R-Fe-B based magnetic powder and hard ferrite magnetic powder is adjusted to 2.0/98.0–98.5/1.5 as wt.% is mixed with 0.5–45wt.% to the total of the anisotropic R-Fe-B based magnetic powder. Primary molding is so performed that the density becomes 3–5.7g/cm³ at a temperature lower than or equal to a resin softening start temperature. After heating is performed at a temperature higher than or equal to the resin softening start temperature and lower than or equal to a resin curing start temperature secondary molding wherein molding pressure is 2–10ton/cm³ is performed in a magnetic field, and curing treatment is performed. R is to containing one or more kinds of rare earth elements Y.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 06.03.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]
[Patent number]
[Date of registration]
[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-320876

(43) 公開日 平成9年(1997)12月12日

(51) Int.Cl. ^a	職別記号	序内整理番号	F I	技術表示箇所
H 01 F	41/02		H 01 F 41/02	G
B 22 F	1/00		B 22 F 1/00	Y
	3/00		3/00	F
C 22 C	38/00	3 0 3	C 22 C 38/00	3 0 3 D
H 01 F	1/053		H 01 F 1/04	H

審査請求 未請求 請求項の数 2 FD (全 9 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願平8-358309
(22) 出願日	平成8年(1996)12月27日
(31) 優先権主張番号	特願平8-104198
(32) 優先日	平8(1996)3月29日
(33) 優先権主張国	日本 (JP)

(71) 出願人	000183417 住友特殊金属株式会社 大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号
(72) 発明者	辻本 秀治 大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
(72) 発明者	三野 修嗣 大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
(72) 発明者	石垣 尚幸 大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
(74) 代理人	弁理士 押田 良久

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 異方性ボンド磁石の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 成形時に均質な成形体を生産性よく得るとともに、耐食性、磁石特性の優れた異方性ボンド磁石が得られる製造方法の提供。

【解決手段】 異方性R-F e-B系磁石粉末に、特定量で所定配合比の微細な液体急冷R-F e-B系磁石粉末とハードフェライト磁石粉末、並びに熱硬化性樹脂を添加混合した後、樹脂軟化開始温度以下にて成形体の密度が特定密度になるごとく1次成形した後、樹脂軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に加熱し、磁場中にて特定の成形圧にて2次成形後硬化処理することにより、高い磁気特性と共に均質な異方性ボンド磁石を生産性よく製造できる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 平均再結晶粒径が $0.05\text{ }\mu\text{m} \sim 50\text{ }\mu\text{m}$ のR, Fe₁₄B正方晶相からなる再結晶粒の集合組織を有する異方性R-Fe-B系磁石粉末が45wt%～98.5wt%、樹脂が1wt%～10wt%、液体急冷R-Fe-B系磁石粉末とハードフェライト磁石粉末の配合比率が重量比にて2.0/98.0～98.5/1.5となるように調整した配合粉末を前記異方性R-Fe-B系磁石粉末との合計に対して0.5wt%～45wt%からなり、これらを混合した後、樹脂軟化開始温度以下にて成形体の密度が3～5.7g/cm³になるよう1次成形した後、樹脂軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に加熱後、磁場中にて成形圧2～10ton/cm²の2次成形し、その後硬化処理することを特徴とする異方性ボンド磁石の製造方法。

【請求項2】 請求項1において、異方性R-Fe-B系磁石粉末は、R 10～30at% (RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上)、B 2～28at%、Fe 6.5～8.0at%を主成分とする鉄塊、あるいは溶体化処理した鉄塊を750°C～950°Cに30分～8時間、H₂ガス雰囲気中に保持した後、引き続いて温度750°C～950°Cに15分～4時間、真空雰囲気中に保持した水素化処理にて得られた磁石粉末である異方性ボンド磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、耐熱性、耐候性と共に磁気特性、特に残留磁束密度（以下B_rといふ）、最大磁気エネルギー積（以下(BH)_{max}といふ）および角型性のすぐれた異方性ボンド磁石の製造方法に係り、R-Fe-B系合金鉄塊あるいは前記鉄塊を粉碎して得られた粗粉碎粉を特定の熱処理条件のH₂処理法により、特定の平均再結晶粒径を有する正方晶のR, Fe₁₄B相の再結晶粒集合組織を有する異方性磁石粉末となし、これに特定量の微細な液体急冷R-Fe-B系磁石粉末とハードフェライト磁石粉末、並びにバインダーの樹脂を配合混合後、2段階の成形を行い、さらに硬化処理することにより、成形時の単位重量のばらつきが少なく製品寸法精度が高く、さらに耐熱性、耐候性並びにB_r、(BH)_{max}、角型性のすぐれた異方性ボンド磁石を生産性よく製造する方法に関する。

【0002】

【従来の技術】一般にボンド磁石は焼結磁石に比して、磁気特性では劣るにもかかわらず、機械的強度にすぐれ、且つ形状の自由度が高いこと等より、近年、その利用範囲が急速に拡大している。かかるボンド磁石は、磁石粉末と有機バインダー、金属バインダー等により結合して成形されるが、ボンド磁石の磁気特性は使用する磁石粉末の磁気特性に左右される。

【0003】ボンド磁石用磁石粉末としては、(1) R

-Fe-B系鉄塊を機械的粉碎法、あるいはH₂吸蔵崩壊法により得られた磁石粉末や、あるいは、(2)液体急冷法やアトマイズ法によって、溶融合金から超急冷して得られた磁石粉末が利用されている。

【0004】前者の(1)磁石粉末では、R, Fe₁₄B相が粒内破壊して粉碎されるので、R, Fe₁₄B相がRリッチ相で囲まれた組織にならず、R, Fe₁₄B相の一部にRリッチ相が一部付着した組織となり、また、粉碎時に磁石粉末に歪が残留するため、粉碎のままでは保磁力iHcは3kOe以下に低下し、歪取り熱処理した磁石粉末やR, Fe₁₄B相粒界部にRリッチ相を形成させる集合粉末とした磁石粉末でも、ボンド磁石用粉末として使用した場合、成型圧力の増加に伴って、ボンド磁石のiHcは大幅に低下し、また、バインダーの硬化時にも磁気特性が低下する欠点がある。

【0005】一方、後者の(2)磁石粉末の場合は、個々のR, Fe₁₄B相の結晶粒の結晶方向が任意で粉末の磁気特性が等方性であるため、ボンド磁石自体も等方性であるため、高磁気特性が望めず、実用的には用途が制限される問題がある。

【0006】また、ボンド磁石の磁気特性の改善向上のため、R-Fe-B系磁石粉末を2段成形することが提案（特開平2-250303号公報）されているが、前記公報に記載のR-Fe-B系磁石粉は液体急冷法にて得られた等方性磁石粉末であり、また得られたボンド磁石も等方性磁石のため、磁気特性の改善向上は期待できなかった。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】そこで、異方性ボンド用磁石粉末として、R-Fe-B系合金鉄塊あるいは粉碎後の粗粉碎粉を特定の熱処理条件のH₂処理法により、R, Fe₁₄B正方晶相からなる再結晶集合組織とした異方性R-Fe-B系磁石粉末が提案（特開平1-132106号）されている。

【0008】前記異方性磁石粉末を用いて異方性ボンド磁石を製造する方法としては、前記磁石粉末にバインダーとして溶剤にて液状化した樹脂を添加配合後、溶剤を蒸発させて前記粉末を乾燥後、圧縮成形し、さらにバインダー硬化のためのキュア熱処理する工程などが一般的に知られている。

【0009】しかし、原料粉末の異方性磁石粉末は非常に酸化され易いえ、予め磁石粉末をカッピング処理等で粉末表面を被覆しても、成形時の応力によって磁石粉末には割れが発生し、活性な金属面が露出してより酸化され易くなり、また、成形したボンド磁石は密度が低くて空孔部が多く、前記空孔部にO₂、H₂Oが容易に侵入してボンド磁石が酸化し、磁気特性が時間とともに劣化する問題があった。さらに成形時に磁石粉末が割れることは、磁石粉末へ多量の歪を導入することを意味し、保磁力および角型性の劣化を生じる観点からも好ましく

なかった。

【0010】発明者等は、耐食性のすぐれた高性能ボンド磁石を得るために、前記異方性ボンド磁石にハードフェライト磁石粉末を添加配合した高性能ボンド磁石を提案（特願平7-273471号）したが、耐食性はすぐれているものの、ハードフェライト磁石粉末は磁気特性が低いために、ボンド磁石の磁気特性は向上するが、その効果は十分でなかった。

【0011】また、発明者等は、耐食性のすぐれた高性能ボンド磁石を得るために、前記異方性ボンド磁石に液体急冷R-F e-B系磁石粉末を添加配合した高性能ボンド磁石を提案（特願平7-353312号）したが、ボンド磁石の磁気特性の向上効果は大きいが、液体急冷R-F e-B系磁石粉末自体も酸化により、磁気特性の劣化が起こるため、耐食性の改善効果は小さかった。

【0012】また、ボンド磁石の密度および磁石特性のさらなる改善向上のため、水素化処理した磁気異方性を有する原料粉末を室温にして低圧力により仮成形し、原料粉末の脱気を行った後、原料粉末を加熱して温間中で磁場中成形する方法が提案（特開平8-31677号）されているが、前記方法を用いても、ボンド磁石の密度の向上が充分でなく、このため磁気特性の向上も最大エネルギー積（B H）_{m a x}で0.2～0.5MGOeに止まり、さらにボンド磁石内部の空孔部は依然として多く存在するため、ボンド磁石の酸化による磁石特性の経時的劣化により改善向上は期待できなかった。

【0013】また、発明者はボンド磁石の磁気特性の著しい改善向上のため、R-F e-B系鉄塊あるいは粉碎後の粗粉碎粉を特定の熱処理条件にて水素化処理して得られた特定の平均再結晶粒径を有する正方晶R₁F_{e1}、B相の再結晶粒集合組織を有する異方性磁石粉末に熱硬化樹脂を添加混合後、温間中にて磁場中成形した異方性ボンド磁石を提案（特願平6-311874号）したが、前記方法では加熱された金型中に原料粉末を供給中に、原料粉末は金型上表面及び内壁面に溶着するため、金型中に原料粉末を充填することが非常に困難であり、仮りに金型内に原料粉末を充填できたとしても、均一な充填が行われず、成形体内部の密度のバラツキの発生、または製品の単位重量バラツキの発生等、生産性の点でも問題があった。

【0014】この発明は、上述の異方性ボンド磁石の製造方法の問題を解消し、耐熱性、耐候性と共に磁気特性、特にB_r、（B H）_{m a x}および角型性のすぐれた異方性ボンド磁石を成形時に単位重量のバラツキが少なく、製品寸法精度高く提供することを目的としている。

【0015】

【課題を解決するための手段】従来の異方性ボンド磁石の問題点を解決すべく、発明者らは、成形したボンド磁石中の空孔部を減少させる方法について、種々検討を加えた結果、前記磁石粉末にバインダーとして樹脂を配合

混合する前、もしくは配合混合と同時に、あるいは配合混合した後に、特定量の微細な液体急冷R-F e-B系永久磁石粉末を及びハードフェライト磁石粉末を配合混合することにより、（1）液体急冷R-F e-B系磁石微粉末及びハードフェライト磁石粉末は成形時に磁石粉末間隙、あるいは薄く樹脂にて被覆された磁石粉末間隙に優先的に充填され、かかる現象により、ボンド磁石中の空孔率が減少し、この空隙部からボンド磁石内部にO₂、H₂Oが侵入することを防止し、ボンド磁石の耐熱性、耐候性が向上すること、（2）ボンド磁石内部の空隙部に充填される添加粉末である液体急冷R-F e-B系磁石微粉末及びハードフェライト磁石粉末は硬質強磁性体であることから、ボンド磁石の単位体積当たりの硬質強磁性体（R-F e-B系磁石粉末+液体急冷R-F e-B系磁石微粉末+ハードフェライト磁石粉末）の総量は増加し、これによりボンド磁石の磁気特性、特にB_rの低下を防止し、向上させること、（3）ボンド磁石内部の空隙部に充填されるハードフェライト磁石粉末は酸化物であり、O₂、H₂Oによる磁気特性の酸化、水酸化劣化がなく、ボンド磁石の耐熱性、耐候性が向上すること、（4）ボンド磁石成形時において、液体急冷R-F e-B系磁石微粉末とハードフェライト磁石粉末の混合粉末は成形時に起る磁石粉末局部への応力集中を緩和し、磁石粉末の割れによる活性な金属面の発生を抑制するので、耐熱性、耐候性は一段と向上すること、（5）また、前記応力集中の緩和により、磁石粉末に発生の歪を抑制するため磁気特性が向上すること、（6）さらに前記のごとくボンド磁石の成形を温間中で行うことにより樹脂は軟化して流動性が増すため、密度が向上し、その結果磁気特性の向上と空隙率の低減が図られること、（7）前記の各作用効果の相乗により、ボンド磁石の耐熱性、耐候性の向上及び磁気特性の改善向上に有効であること、の種々の作用効果を知見した。

【0016】また、発明者らは、温間成形時の問題点を解決すべく、種々検討した結果、前記異方性R-F e-B系磁石粉末と液体急冷R-F e-B系磁石微粉末とハードフェライト粉末及び熱硬化性樹脂の混合物を樹脂軟化開始温度以下にて成形体の密度が特定密度になるごとく1次成形した後、樹脂軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に加熱し、磁場中にて特定の成形圧力にて2次成形後、硬化処理することにより、高い磁気特性と共に均質な異方性ボンド磁石を生産性よく、製造できることを知見し、この発明を完成した。

【0017】すなわち、この発明は、平均再結晶粒径が0.05μm～50μmのR₁F_{e1}、B正方晶相からなる再結晶粒の集合組織を有する異方性R-F e-B系磁石粉末が45wt%～98.5wt%と樹脂が1wt%～10wt%、液体急冷R-F e-B系磁石粉末及びハードフェライト磁石粉末の配合比率が、重量比にて2.

0/98. 0~98. 5/1. 5となるように調整した配合粉末を前記異方性R-F e-B系磁石粉末との合計に対して0. 5~4.5 wt%からなり、これらを配合混合後、樹脂軟化開始温度以下にて、成形体の密度が3~5.7 g/cm³になるごとく、1次成形した後、樹脂軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に加熱後、磁場中にて成形圧2~10 ton/cm²の2次成形し、その後、硬化処理することを特徴とする異方性ボンド磁石の製造方法である。

【0018】また、この発明は、上記の製造方法において、異方性R-F e-B系磁石粉末に、R 10~30 at% (RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上)、B 2~28 at%、Fe 65~80 at%を主成分とする鉄塊あるいは溶体化処理した鉄塊を750°C~950°Cに30分~8時間、H₂ガス雰囲気中に保持した後、引き続いて温度750°C~950°Cに15分~4時間、真空雰囲気中に保持した水素化処理して得られた磁石粉末を用いる異方性ボンド磁石の製造方法を併せて提案する。

【0019】

【発明の実施の形態】この発明において、R₂Fe₁₄B正方晶相からなる再結晶集合組織の磁石粉末は、R-F e-B系合金鉄塊あるいは前記鉄塊を粗粉碎して得られた粗粒を均質化処理するか、または、均質化処理せずにH₂ガス雰囲気中で昇温し、温度750°C~950°Cに30分~8時間のH₂ガス雰囲気中に保持した後、引き続いて温度750°C~950°Cに5分~4時間の真空雰囲気中に保持した後、冷却し、粉碎して得られるものである。

【0020】かかる異方性R-F e-B系磁石粉末の平均粒度を5 μm~500 μmに限定した理由は、5 μm未満では酸化し易く作業中に燃える恐れがあり、また、500 μmを超えると磁石粉末として実用的ではないので好ましくないことにあり、好ましい平均粒度は10 μm~300 μmである。

【0021】また、異方性R-F e-B系磁石粉末の平均再結晶粒径は、0.05 μm未満では着磁が困難となり、50 μmを超えるとiHc(保磁力)が5kOe以下となり、磁気特性が低下するため、0.05 μm~50 μmの範囲とし、好ましい平均再結晶粒径は0.1 μm~10 μmである。

【0022】この発明において、特定の異方性R-F e-B系磁石粉末に配合混合する、液体急冷R-F e-B系磁石粉末には、超急冷により非晶質あるいは非晶質と超微細結晶との混合組織からなるテープやリボンを再結晶化処理した磁気的に等方性である等方性R-F e-B系磁石粉末を用いることができる。また、同様に超急冷により非晶質と軟磁性結晶材料との中間状態で磁気的に等方性である等方性R-F e-B系磁石粉末を用いることもできる。

【0023】また、液体急冷R-F e-B系磁石粉末の平均粒度は、1.0 μm未満では実際の製造上困難かつ粉末の磁気特性の低下を生じ、また、50 μmを超えると成形時の空孔低減効果や、応力緩和効果、すなわち磁石粉末の割れ抑制効果が少なく、耐熱性、耐候性並びに磁気特性向上の効果が少ないので好ましくなく、液体急冷R-F e-B系磁石粉末の粒度は1.0 μm~50 μmとする。さらに好ましい液体急冷R-F e-B系磁石粉末の粒度は1.0 μm~10 μmである。

【0024】この発明において、配合添加するハードフェライト磁石粉末は化学式MO·6Fe₂O₃ (M: Ba, Sr, Pb) で表されるM型及び化学式2MO·BaO·8Fe₂O₃ (M: Ba, Sr, Pb) で表されるW型等のいずれでもよい。前記ハードフェライト磁石粉末の平均粒度は、0.5 μm以下では製造的に困難であり、ハードフェライト磁石粉末同士が凝集して均一に分散し難いため好ましくなく、また、10 μmを超えるとボンド磁石内部の空隙部に十分に充填され難いばかりでなく、ハードフェライト磁石粉末の磁気特性の低下が大きいため、ボンド磁石の耐熱性、耐候性及び磁気特性向上の効果が少ないので好ましくなく、ハードフェライト磁石粉末の平均粒度は0.5 μm~10 μmとする。さらに好ましい平均粒度は0.5 μm~5 μmである。

【0025】また、異方性R-F e-B系磁石粉末に配合する液体急冷R-F e-B系磁石粉末とハードフェライト磁石粉末の総量は、前記異方性R-F e-B系磁石粉末との合計に対して、0.5 wt%未満では耐熱性、耐候性及び磁気特性の改善効果が得られず、また、4.5 wt%を超えるとボンド磁石の磁気特性が劣化するので、0.5 wt%~4.5 wt%とする。さらに好ましい添加配合量は3 wt%~30 wt%である。

【0026】また、前記磁石粉末に添加配合する液体急冷R-F e-B系磁石粉末(比重7.6)とハードフェライト磁石粉末(比重5.1)の配合比率を、重量比で2.0/98.0~98.5/1.5に限定する理由は、液体急冷R-F e-B系磁石粉末の配合量が2.0未満、ハードフェライト磁石粉末が98.0を超えると、異方性ボンド磁石の耐熱性、耐候性の改善向上の効果が充分に得られず、また、液体急冷R-F e-B系磁石粉末の配合量が98.5を越え、ハードフェライト磁石粉末が1.5未満ではボンド磁石の磁気特性の改善効果が少ないので好ましくない。好ましい液体急冷R-F e-B系磁石粉末とハードフェライト磁石粉末の配合比率は重量比にて30.0/70.0~80.0/20.0である。

【0027】この発明の異方性R-F e-B系磁石粉末に用いる希土類元素Rは、組成の10原子%~30原子%を占めるが、Nd, Pr, Dy, Ho, Tbのうち少なくとも1種、あるいはさらに、La, Ce, Sm, Gd, Er, Eu, Tm, Yb, Lu, Yのうち少なくと

も1種を含むものが好ましい。また、通常Rのうち1種をもって足りるが、実用上は2種以上の混合物（ミッショメタル、シジム等）を入手上の便宜等の理由により用いることができる。なお、このRは純希土類元素でなくともよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純物を含有するものでも差し支えない。

【0028】Rは、上記系磁石粉末における必須元素であって、10原子%未満では結晶構造が α -鉄と同一構造の立方晶組織となるため、高磁気特性、特に高保磁力が得られず、30原子%を超えるとRリッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度（B_r）が低下してすぐれた特性の永久磁石が得られない。よって、Rは、10原子%～30原子%の範囲が望ましい。

【0029】Bは、上記系磁石粉末における必須元素であって、2原子%未満では菱面体構造が主相となり、高い保磁力（iHc）は得られず、28原子%を超えるとBリッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度（B_r）が低下するため、すぐれた永久磁石が得られない。よって、Bは2原子%～28原子%の範囲が望ましい。

【0030】Feは、上記系磁石粉末において必須元素であり、65原子%未満では残留磁束密度（B_r）が低下し、80原子%を超えると高い保磁力が得られないで、Feは65原子%～80原子%の含有が望ましい。また、Feの一部をCoで置換することは、得られる磁石の磁気特性を損なうことなく、温度特性を改善することができるが、Co置換量がFeの20%を超えると、逆に磁気特性が劣化するため、好ましくない。Coの置換量がFeとCoの合計量で5原子%～15原子%の場合、（B_r）は置換しない場合に比較して増加するため、高磁束密度を得るために好ましい。

【0031】また、R、B、Feのほか、工業的生産上不可避の不純物の存在を許容でき、例えば、Bの一部を4.0wt%以下のC、2.0wt%以下のP、2.0wt%以下のS、2.0wt%以下のCuのうち少なくとも1種、合計量で2.0wt%以下で置換することにより、永久磁石の製造性改善、低価格化が可能である。

【0032】さらに、Al、Ti、V、Cr、Mn、Bi、Nb、Ta、Mo、W、Sb、Ge、Ga、Sn、Zr、Ni、Si、Zn、Hfのうち少なくとも1種は、磁石粉末に対してその保磁力、減磁曲線の角型性を改善あるいは製造性の改善、低価格化に効果があるため添加することができる。なお、添加量の上限は、ボンド磁石の（BH）_{max}を14MGOe以上とするには、（B_r）が少なくとも8kG以上必要となるため、該条件を満たす範囲が望ましい。

【0033】配合混合に用いる液体急冷R-Fe-B系磁石粉末は、商品名MQPで称される磁石粉末（平均粒径約150μm）を数μm～数10μmまで微粉碎して得る。液体急冷R-Fe-B系磁石粉末の組成は、R（但しRはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種）

8原子%～30原子%、B2原子%～28原子%、Fe42原子%～90原子%を主成分とする。Rは、8原子%未満では高磁気特性、特に高保磁力が得られず、30原子%を超えると残留磁束密度（B_r）が低下してすぐれた特性の永久磁石材料が得られないため、8原子%～30原子%の範囲とし、Bは、2原子%未満では高い保磁力（iHc）は得られず、28原子%を超えるとBリッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度（B_r）が低下するため、2原子%～28原子%の範囲とし、Feは、42原子%未満では残留磁束密度（B_r）が低下し、90原子%を超えると高い保磁力が得られないで、42原子%～90原子%の含有とし、Feの一部をCoで置換したり、種々の添加元素を添加できる。

【0034】また、この発明において、熱硬化性樹脂の種類は特に制限されないが、従来よりボンド磁石に使用されるエポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリエステル樹脂などを用いることができ、特に熱硬化性樹脂としてはエポキシ樹脂が好ましい。熱硬化性樹脂は必要に応じて、硬化剤、硬化促進剤と一緒に使用する。

【0035】熱硬化性樹脂は、軟化温度が40°C～100°Cのものが使用でき、好ましい樹脂の軟化温度は50°C～90°Cである。樹脂の軟化温度が40°C未満では常温でも原料粉末の流动性が悪くなり、均質な1次成形体は得難く、また100°Cを超えると、2次成形時金型に投入した1次成形体を樹脂の軟化温度以上に加熱するのに長時間を要し、また加熱時の温度調整や磁場印加のための磁気回路の設計も難しくなるので問題があるので、軟化温度が40°C～100°Cのものを使用することが望ましい。

【0036】また、バインダーとしての樹脂の配合量は、1wt%未満ではボンド磁石の強度が十分に得られず、また10wt%を超えると磁気特性の劣化を招来するので好ましくないため、樹脂の配合量は1～10wt%とする。さらに好ましい樹脂の配合量は2～5wt%である。

【0037】この発明の製造条件について限定した理由を説明する。1次成形において、温度が樹脂の軟化開始温度を超えると、原料粉末の流动性が失われて、金型への充填が困難になるため、温度は樹脂の軟化開始温度以下とする。1次成形においては、磁場の付与は任意であるが、磁場は付与しない方が金型減磁の影響がなく、より均一な原料粉末の充填が可能となり、また生産性が大で成形体の残磁もないため、1次成形体への粉つきも少なくかつ作業もし易いため好ましい。

【0038】成形体の密度は、原料の磁石粉末と樹脂との混合粉末の粒度分布及び成形圧により決まるが、成形体の密度が3g/cm³未満では1次成形体の強度が低くハンドリングに支障を及ぼすため、2次成形時、金型内に1次成形体を金型内に装入することが困難となり、また、5.7g/cm³を超えると磁石粉末の機械的な

拘束力が強く、2次成形時の磁場配向が困難となるので好ましくない。なお、1次成形体の形状、寸法は2次成形用金型内に装入することより、2次成形体の形状、寸法より小でなければならない。

【0039】また、2次成形において、温度を樹脂の軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に限定した理由は、樹脂の軟化開始温度未満ではボンド磁石の密度が低く十分な磁石特性及び強度が得られないためであり、また、硬化開始温度を超えると成形体を得る以前に硬化が開始し、磁場配向並びに高密度化が困難となり、また磁石粉末が酸化し、得られたボンド磁石の磁気特性、耐食性も低下するためである。

【0040】また、2次成形圧が $2\text{ Ton}/\text{cm}^2$ 未満ではボンド磁石の密度が低く、優れた磁気特性が得られず、また、 $10\text{ Ton}/\text{cm}^2$ を超えると金型の損傷、破損を惹起するので好ましくない。好ましい成形圧は $2\text{ Ton}/\text{cm}^2 \sim 10\text{ Ton}/\text{cm}^2$ である。この2次成形時の磁場の強さは 2 kOe 以上、好ましくは 5 kOe 以上で、上限値は規定しないが、直流電流コイルによる静磁場の上限は実用上、 30 kOe 程度であり、また、パルス強磁場を単独または静磁場との併用で用いてよい。パルス強磁場では 50 kOe 以上の磁場を得ることも可能であり、より好ましい。

【0041】

【実施例】

実施例1

原料として真空溶解炉にて溶解鉄造し、組成がNd 1.5 at% - Fe 6 at% - Co 12 at% - Ga 0.5 at% - 残部Feからなる、R - Fe - B系磁石用合金鉄塊を得た。これらの合金鉄塊を温度 1130°C 、時間10時間でAr雰囲気中にて均質化処理を行った。前記鉄塊を加熱炉に挿入し、 760 Torr のH₂ガスとして、加熱炉内の温度を室温から温度 860°C に上昇し、引き続いて温度 860°C に2時間保持した後、 860°C に1時間保持して脱H₂を行って、真空中 $1 \times 10^{-5}\text{ Torr}$ になるまで排気冷却した。その後、鉄塊をAr雰囲気中で $300\mu\text{m}$ 以下になるまで粉碎して、R - Fe - B系磁石粉末を得た。得られた磁石粉末は平均結晶粒径 $0.5\mu\text{m}$ のR₂Fe₁₄B正方晶相からなる再結晶粒の集合組織を有する異方性磁石粉末であった。

【0042】液体急冷R - Fe - B系永久磁石微粉末には、組成がNd 12 at% - B 5.4 at% - Co 5 at% - 残部Feからなる平均粒径約 $150\mu\text{m}$ の商品名、MQP - B磁粉（中国クエンチインターナショナル社製）を用い、該磁粉をジェットミルにより微粉碎して平均粒度 $3.3\mu\text{m}$ の液体急冷Nd - Fe - B系磁石微粉末を得た。また、SrO・Fe₂O₃で表されるM型Srフェライト磁石を用い、該磁石をボールミルにより微粉碎後、 800°C で熱処理して平均粒径 $20\mu\text{m}$ のSrフェライト粉末を得た。

【0043】前記液体急冷R - Fe - B系磁石微粉末とハードフェライト磁石粉末を、前述の工程で得られた平均粒径 $150\mu\text{m}$ の前記異方性磁石粉末との合計に対してそれぞれ7.5 wt%配合後、V型混合器にて30分間混合し、さらに、バインダーとして3 wt%のエポキシ樹脂（軟化開始温度 59°C 、硬化開始温度 110°C ）を配合混合後、真空乾燥し、異方性ボンド磁石用コンパウンドを得た。

【0044】このコンパウンドを温度 25°C のプレス金型に自動給粉装置を用いて充填後に、成形圧力を変えて、成形体密度 $3.3 \sim 5.6\text{ g/cm}^3$ になるごとく、各条件にて40個を1次成形した後、それらを温度 70°C ならびに 90°C のプレス金型に挿入し、磁場の強さ 10 kOe の静磁場にて成形圧 $7\text{ ton}/\text{cm}^2$ の2次成形を行い、得られた2次成形体を 180°C で2時間の硬化処理を行って、各条件ごと20個の異方性ボンド磁石を得た。

【0045】得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に表す。ここで、空孔率は、異方性磁石粉末、液体急冷R - Fe - B系磁石粉末とハードフェライト磁石粉末並びに樹脂の密度と配合比、および成形したボンド磁石の実測密度から計算によって求めた。

【0046】また、耐熱性、耐候性試験の試験条件は大気中で $100^\circ\text{C} \times 1000$ 時間の条件で、試験中の磁束の経時変化を測定した。なお、磁束の経時変化試験方法は試験片を着磁した後、磁束を測定し、ついで大気中にて 100°C に1000時間放置後、再び試験片を着磁し磁束を測定し、再着磁によっても復元しない減磁率、すなわち永久的な減磁率を算出した。この永久的な減磁は磁石の腐食等による変質に起因するものであり、耐熱性、耐候性向上の判定指標となり得る。また、ボンド磁石の成形の安定性を評価するために、作製した20個のボンド磁石について重量を測定し、そのばらつきについて調査した結果を、表3に表す。

【0047】比較例1

実施例1にて得られた磁石粉末に、液体急冷R - Fe - B系永久磁石粉末及びSr - フェライト磁石粉末を配合混合しない以外は実施例1と同一の製造条件（ただし、40 2次成形温度は 90°C に限定）にて異方性ボンド磁石を作成し、得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に、重量測定結果を表3に表す。なお、この比較例1の製造方法は、前述した特開平8-31677号に記載の製造方法に相当する。

【0048】比較例2

実施例1にて得られた磁石粉末に、液体急冷R - Fe - B系永久磁石粉末を15 wt%配合混合する以外は実施例1と同一の製造条件（ただし、2次成形温度は 90°C に限定）にて異方性ボンド磁石を作成し、得られた異方

11

性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に、重量測定結果を表3に表す。

【0049】比較例3

実施例1にて得られた磁石粉末にSr-フェライト磁石粉末を15wt%配合混合する以外は実施例1と同一の製造条件(ただし、2次成形温度は90°Cに限定)にて異方性ボンド磁石を作成し、得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に、重量測定結果を表3に表す。

【0050】比較例4

*実施例1と同一の異方性ボンド磁石用コンパウンドを金型温度90°Cのプレス金型に自動給粉装置を用いて充填後、10kOeの静磁場中、7ton/cm³の成形圧力で20個の成形体を作製し、得られた成形体を170°Cで1時間硬化処理して異方性ボンド磁石を得た。得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に、重量測定結果を表3に表す。

【0051】

*10 【表1】

0	No.	液体急冷R-Fe-B系 永久磁石微粉末量 (wt%)	Sr-フェライト 磁石粉末量 (wt%)	1次成形体の 密度(g/cm ³)	2次成形温度 (°C)
実 施 例 1	1	7.5	7.5	3.0	70
	2	7.5	7.5	3.5	70
	3	7.5	7.5	4.2	70
	4	7.5	7.5	4.9	70
	5	7.5	7.5	5.5	70
	6	7.5	7.5	3.0	90
	7	7.5	7.5	3.5	90
	8	7.5	7.5	4.2	90
	9	7.5	7.5	4.9	90
	10	7.5	7.5	5.5	90
比較 例 1	1	0	0	3.0	90
	2	0	0	3.5	90
	3	0	0	4.2	90
	4	0	0	4.9	90
	5	0	0	5.5	90
比較 例 2	1	15	0	3.0	90
	2	15	0	3.5	90
	3	15	0	4.2	90
	4	15	0	4.9	90
	5	15	0	5.5	90
比較 例 3	1	0	15	3.0	90
	2	0	15	3.5	90
	3	0	15	4.2	90
	4	0	15	4.9	90
	5	0	15	5.5	90
比較 例 4	1	7.5	7.5	-	90

【0052】

【表2】

No.	ボンド磁石特性			角型性 (kOe)	空孔率 (%)	耐候性試験後の 永久的な減磁 (%)
	Br(kG)	(BH)max (MGoe)	iHc(kOe)			
実施例1	1	9.38	18.8	12.70	4.63	3.1
	2	9.40	18.9	12.65	4.65	3.1
	3	9.39	18.9	12.67	4.65	3.1
	4	9.39	18.9	12.65	4.66	3.1
	5	9.37	18.8	12.69	4.64	3.1
	6	9.44	19.2	12.68	4.67	2.9
	7	9.45	19.2	12.69	4.65	2.8
	8	9.48	19.3	12.66	4.68	2.8
	9	9.47	19.2	12.87	4.67	2.8
	10	9.49	19.3	12.66	4.69	2.8
比較例1	1	9.21	17.9	12.61	4.42	8.8
	2	9.19	17.8	12.63	4.44	8.9
	3	9.20	17.8	12.62	4.39	8.9
	4	9.19	17.8	12.62	4.43	8.8
	5	9.19	17.8	12.65	4.42	8.9
比較例2	1	9.46	19.2	12.68	4.66	2.9
	2	9.48	19.3	12.67	4.67	3.0
	3	9.45	19.2	12.69	4.67	3.0
	4	9.46	19.2	12.69	4.66	3.0
	5	9.48	19.3	12.66	4.68	2.7
比較例3	1	9.29	18.2	12.68	4.67	2.8
	2	9.30	18.2	12.67	4.65	2.8
	3	9.33	18.3	12.65	4.58	2.8
	4	9.31	18.2	12.67	4.66	2.8
	5	9.28	18.1	12.70	4.67	2.8
比較例4	1	9.46	19.2	12.68	4.67	2.8

[0053]

【表3】

No.	ボンド磁石重量(g) (n=20)			
	平均	最小	最大	標準偏差
実施例1	5.0776	5.0011	5.1702	0.0413
	5.0811	5.0105	5.1741	0.0402
	5.0887	5.0214	5.1820	0.0398
	5.0936	5.0280	5.1869	0.0395
	5.1012	5.0393	5.1927	0.0383
	5.0837	5.0121	5.1756	0.0422
	5.0894	5.0226	5.1834	0.0412
	5.0928	5.0263	5.1842	0.0403
	5.0903	5.0300	5.1878	0.0399
	5.1006	5.0387	5.1910	0.0385
比較例1	5.0119	4.9404	5.1098	0.0415
	5.0132	4.9448	5.1135	0.0419
	5.0157	4.9575	5.1186	0.0481
	5.0172	4.9674	5.1271	0.0397
	5.0188	4.9821	5.1357	0.0384
比較例2	5.0854	5.0117	5.1749	0.0418
	5.0842	5.0121	5.1763	0.0406
	5.0890	5.0221	5.1826	0.0399
	5.0979	5.0285	5.1862	0.0394
	5.0997	5.0363	5.1905	0.0388
比較例3	5.0734	5.0002	5.1698	0.0388
	5.0779	5.0088	5.1729	0.0420
	5.0817	5.0110	5.1746	0.0401
	5.0869	5.0198	5.1804	0.0398
	5.0952	5.0914	5.1841	0.0386
比較例4	4.426	4.186	4.741	0.1584

【0054】

【発明の効果】この発明による異方性ボンド磁石は、R - Fe - B系鉄塊あるいは前記鉄塊を粉碎して得られた粗粉碎粉を、特定の熱処理条件のH₁処理法により、特定の平均再結晶粒径を有する正方晶のR₂Fe₁₄B相の再結晶粒集合組織を有する異方性磁石粉末となし、これに所定配合比の微細な液体急冷R - Fe - B系磁石粉末とハードフェライト磁石粉末並びにバインダー樹脂を配合*

* 合成後、特定の温度範囲で特定密度範囲に1次成形した成形体を次いで所定の温度範囲、磁場強度範囲、成形圧力範囲で2次成形して得られたもので、この方法によれば、実施例に明らかなように磁気特性に優れかつ単重重ばらつきの少ない、すなわち寸法精度の高く、耐熱、耐食性に優れた異方性ボンド磁石を安定して製造することができる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁶

H 01 F 1/08

識別記号 庁内整理番号

F I

H 01 F 1/08

技術表示箇所

A

(72)発明者 徳原 宏樹

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.